

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



7
B5

INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : A61K 9/20, 9/00, 31/375, A23G 3/00	A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/06029 (43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 11. Februar 1999 (11.02.99)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP98/04556 (22) Internationales Anmeldedatum: 21. Juli 1998 (21.07.98) (30) Prioritätsdaten: 197 33 094.0 31. Juli 1997 (31.07.97) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): MERCK PATENT GMBH [DE/DE]; Frankfurter Strasse 250, D-64293 Darmstadt (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHWARZ, Eugen [DE/DE]; Weserstrasse 16, D-64625 Bensheim (DE). MÖSCHL, Gernot [DE/DE]; Falltorstrasse 20, D-64331 Weiterstadt (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: CA, CN, JP, US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>
(54) Title: ASCORBIC ACID-BASED FORMULATION WITH IMPROVED COLOUR STABILITY (54) Bezeichnung: FORMULIERUNG AUF DER BASIS VON ASCORBINSÄURE MIT VERBESSERTER FARBSTABILITÄT (57) Abstract The invention relates to a novel ascorbic acid-based formulation with an improved flavour, said formulation also being directly compressible and having improved colour stability. (57) Zusammenfassung Die Erfindung betrifft eine neue Formulierung auf der Basis von Ascorbinsäure mit einem verbesserten Geschmacksbild, welche direkt komprimierbar ist und eine verbesserte Farbstabilität aufweist.		

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Formulierung auf der Basis von Ascorbinsäure mit verbesserter Farbstabilität

5 Die Erfindung betrifft eine neue Formulierung auf der Basis von Ascorbinsäure mit einem verbesserten Geschmacksbild, welche direkt komprimierbar ist und eine verbesserte Farbstabilität aufweist.

10 Bei der Formulierung oral zu verabreichender pharmazeutischer Zusammensetzungen bereitet in vielen Fällen nicht nur bei flüssigen Applikationsformen das vom Verwender empfundene Geschmacksbild Probleme.

15 Als problematisch hat sich auch bei verschiedensten Wirkstoffen ein als äußerst bitter oder auch sauer empfundener Geschmack erwiesen. Eine Maskierung besonders saurer, bitterer oder kreidiger Wirkstoffe ist bisher durch den Zusatz von Geschmacks- oder Aromastoffen nicht gelungen. Es besteht zwar die Möglichkeit, entsprechende Wirkstoffe enthaltende Tabletten mit einem Überzug zu versehen, diese Methode ist jedoch ungeeignet, wenn eine schnelle Aufnahme des Wirkstoffs, die bereits beim Kauen der Tabletten über die Mundschleimhaut erfolgt, angestrebt wird.

20 Besondere Anforderungen werden auch an die Oberfläche von Tabletten gestellt, die gelutscht werden sollen, wie beispielsweise Haltabletten. Erwünscht ist hierbei eine glatte Oberfläche der eigentlichen Tablette, die während des Lutschens erhalten bleibt und sich nicht nach und nach aufräut.

25 Weiterhin werden heute im Bereich der Nahrungsergänzung (Vitamin- und Mineralstoffsupplementierung) vermehrt Lutsch- und vor allem Kautabletten angeboten.

30 Des weiteren versucht man, bei der Herstellung von festen Formulierungen zunehmend direkt verpreßbare Wirkstoffe (DC-Wirkstoffe) einzusetzen, um Produktionskosten zu senken.

35 Hier hat es sich nun insbesondere bei der Herstellung von Vitamin haltigen Formulierungen als problematisch erwiesen, daß Ascorbinsäure im Handel nicht in direkt verpreßbarer Form erhältlich ist.

- 2 -

Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist es daher, ein Verfahren zur Verfügung zu stellen, wodurch einerseits Ascorbinsäure in einer direkt verpreßbaren Form zugänglich gemacht wird, andererseits das Geschmacksbild von Ascorbinsäure haltigen festen Formulierungen verbessert wird und gleichzeitig das sensorische Mundgefühl der hergestellten Produkte vorteilhaft beeinflusst wird.

Es wurde nun gefunden, daß das Geschmacksbild von Ascorbinsäure enthaltenden festen Zubereitungen, welche 85 bis 98 Gew.-% Ascorbinsäure enthalten, verbessert werden kann, indem eine einen oder mehrere Zuckeralkohole in einer Menge von 1,5 bis 15 Gew.-%, bezogen auf die eingewogene Feststoffmenge, enthaltende wäßrige Zusammensetzung, durch Sprühgranulation bzw. Wirbelschichtgranulation oder Sprüh- Wirbelschichtgranulation in eine fester Form überführt wird.

Gegenstand der Erfindung sind somit Ascorbinsäure enthaltende Zubereitungen in direkt verpreßbarer Form mit verbessertem Geschmacksbild.

Gegenstand der Erfindung ist daher auch ein Verfahren zur Herstellung von Ascorbinsäure enthaltenden festen Zubereitungen in direkt verpreßbarer Form mit verbessertem Geschmacksbild, dadurch gekennzeichnet, daß man

- a) eine wäßrige Lösung hergestellt, enthaltend
 - 85 bis 98 Gew.-% an Ascorbinsäure
 - 1,5 bis 15 Gew.-% eines oder mehrerer Zuckeralkohole
 - bis zu 1,2 Gew.-% eines Bindemittels ,wobei sich die angegebenen prozentualen Mengen der gelösten Substanzen zu 100 Gew.-% addieren,
- b) die erhaltene Lösung in Luftströmungen, welche verschiedene Temperaturen zwischen Raumtemperatur bis 180 °C, bevorzugt 60 bis 140°C, aufweisen versprüht,
- c) wasserdampfhaltiger Luftströmungen, abzieht, und
- d) die sich in einem Wirbelbett niedriger Höhe, welches zudem eine variable Höhe aufweist, bildenden homogenen Partikel als feste Form abführt und

e) bis zu 1 Gew.-% der gebildeten Partikel wieder in den Prozess zurückführt.

Gegenstand der Erfindung sind weiterhin direkt verpreßbare Ascorbinsäure enthaltende Zubereitungen, welche außer mindestens einem Zuckeralkohol bis zu 1,5 Gew.-% eines oder mehrerer Bindemittel aus der Gruppe Cellulose, Methylcellulose, Hydroxymethylpropylcellulose, Carboxymethylcellulose, Stärke, Maltodextrin und Gummi arabicum enthalten.

Die eingesetzte Gesamtmenge Zuckeralkohol ist dabei so zu wählen, daß in dem nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten pulverförmige Substanzgemisch 1,5 bis 15 Gew.-%, insbesondere 2 bis 10 Gew.-% enthalten sind.

Erfindungsgemäß sind zur Herstellung der Ascorbinsäure enthaltenden Zubereitungen Zuckeralkohole aus der Gruppe C₄-C₁₂-Zuckeralkohole geeignet. Besonders geeignete Zuckeralkohole sind insbesondere solche aus der Gruppe Erythrit, Xylit, Mannit und Lactit.

Erfindungsgemäß können in den Zubereitungen 1 Teil Mannit oder Lactit bezogen auf 0,5 bis 2,0 Teilen Sorbit enthalten sein.

Die erfindungsgemäße Zusammensetzung ist daher erhältlich durch Lösen von mindestens einem Zuckeralkohol in Wasser und Lösen oder Suspendieren der Ascorbinsäure und Versprühen des erhaltenen wäßrigen Gemischs in einem Luftstrom mit einer Temperatur von Raumtemperatur bis 180 °C, vorzugsweise 60 bis 140 °C, Abziehen wasserdampfhaltiger Luftströmungen, und Wirbelbett-Behandlung, wobei das Wirbelbett eine niedrige und zugleich variable Höhe aufweist. Die sich bildenden homogenen Partikel werden in fester Form abgeführt. Bis zu 1 Gew.-% der gebildeten Partikel werden wieder in den Prozess zurückführt.

Es ist aber auch möglich das hergestellte wäßrige Gemisch in einem Luftstrom mit einer Temperatur von 40 bis 120 °C zu verwirbeln und einer einfachen Sprühgranulation zu unterziehen. Es hat sich aber gezeigt, daß die vorab beschriebene kombinierte Sprüh-Wirbelschichtgranulation Produkte mit besonders vorteilhaften Eigenschaften liefert.

An sich lassen sich aus den oben beschriebenen erfindungsgemäßen Zubereitungen ohne weitere Aufbereitung direkt durch Verpressen feste Darreichungsformen herstellen, wie z. B. Komprimat. Die durch Sprühgranulation bzw. Sprüh-Wirbelschichtgranulation erhältlichen festen Ascorbinsäurezubereitungen lassen sich auch in einfacher Weise mit einem oder mehreren Wirkstoffen vermischen und zu Tablettenformulierungen verarbeiten. Insbesondere lassen sich diese Formulierungen zu Produkten verarbeiten, die dem Kunden zur Selbstmedikation verkauft werden können. Hierzu zählen unter anderem auch Schmerzmittel in Tablettenform, Mittel gegen Erkältungen, wie z B. Halstabletten u. a. Lutschtabletten. In solchen Lutschtabletten machen sich die verbesserten Eigenschaften durch eine glattere Oberfläche nicht nur direkt nach der Herstellung sondern auch während des Lutschens bemerkbar.

Besonders vorteilhaft lassen sich die erfindungsgemäßen Formulierungen hier in entsprechende Kautabletten einarbeiten, da sie sich einerseits ohne großen Energieaufwand verpressen lassen, andererseits durch das verbesserte Geschmacksbild zu einem verbesserten Kauverhalten führen.

Es sind mit den erfindungsgemäßen Zubereitungen in einfacher Weise auch Nahrungsergänzungspräparate herstellbar, sowohl in Tablettenform als auch in jeglicher anderen, dem Fachmann bekannten Weise. Die pulverförmigen direkt verpreßbaren Ascorbinsäurezubereitungen lassen sich aber auch in die verschiedensten Süßwaren, wie Lutschbonbons, Kaugummis oder anders geartete Süßwaren einarbeiten

Es wurde gefunden, daß die erfindungsgemäßen Ascorbinsäureformulierungen neben einem verbesserten Geschmacksbild und der direkten Verpreßbarkeit auch zu einer besseren Lagerstabilität der hergestellten Produkte führen. Üblicherweise neigen Tablettenformulierungen in denen Ascorbinsäure enthalten ist und denen Bindemittel zugesetzt ist, um eine ausreichende Tablettenhärte zu erzielen, zum Vergilben. Im Gegensatz hierzu weisen entsprechenden Produkte, welche unter Verwendung der erfindungsgemäßen Zubereitungen hergestellt

worden sind, auch nach einer Lagerung von mehreren Monaten keine Verfärbung auf. Dieses ist insbesondere der Fall, wenn zur Herstellung der Zubereitungen nicht hygroskopische Zuckeralkohole, wie Mannit, verwendet werden. Auch werden zufriedenstellende
5 Tablettenhärten ohne Zusatz von Bindemitteln erzielt. Im Vergleich zu üblicherweise hergestellten Tabletten mit einem hohen Ascorbinsäureanteil werden durch Verwendung der erfindungsgemäßen Zubereitungen Produkte erhalten welche in Versuchen einen verminderten Abrieb aufweisen.

10

15

20

25

30

35

PATENTANSPRÜCHE

1. Ascorbinsäure enthaltende Zubereitung erhältlich durch bzw.
Wirbelschichtgranulation eines Gemisches, enthaltend
 - a) 85 bis 98 Gew.-% an Ascorbinsäure,
 - b) 1,5 bis 15 Gew.-% eines oder mehrerer Zuckeralkohole.
2. Ascorbinsäure enthaltende Zubereitung gemäß Anspruch 1 in
direkt verpreßbarer Form mit verbessertem Geschmacksbild.
3. Zubereitung gemäß Anspruch 1 enthaltend bis zu 1,5 Gew.-%
eines oder mehrerer Bindemittel aus der Gruppe Cellulose,
Methylcellulose, Hydroxymethylpropylcellulose,
Carboxymethylcellulose, Stärke, Maltodextrin und Gummi
arabicum.
4. Zubereitung gemäß den Ansprüchen 1 bis 3 enthaltend einen
oder mehrere Zuckeralkohol/e aus der Gruppe der C₄- bis C₁₂-
Zuckeralkohole.
5. Zubereitung gemäß Anspruch 4 enthaltend einen oder mehrere
Zuckeralkohol/e aus der Gruppe Erythrit, Xylit, Mannit und Lactit.
6. Zubereitung gemäß den Ansprüchen 4 bis 5 enthaltend 1 Teil
Mannit oder Lactit bezogen auf 0,5 bis 2,0 Teile Sorbit.
7. Komprimat, enthaltend eine Zubereitung gemäß einem oder
mehreren der Ansprüche 1 bis 6.
8. Tabletten, enthaltend eine Zubereitung gemäß einem oder
mehreren der Ansprüche 1 bis 6.
9. Nahrungsergänzungspräparate, enthaltend eine Zubereitung
gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6.
10. Kaugummi, enthaltend eine Zubereitung gemäß einem oder
mehreren der Ansprüche 1 bis 6.

11. Süßwaren, enthaltend eine Zubereitung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6.

12. Verfahren zur Herstellung einer Zubereitung gemäß einem oder mehreren der Ansprüche 1 bis 6, dadurch gekennzeichnet, daß

a) eine wäßrige Lösung hergestellt wird, enthaltend

— 85 bis 98 Gew.-% an Ascorbinsäure

— 1,5 bis 15 Gew.-% eines oder mehrerer Zuckeralkohole

— bis zu 1,2 Gew.-% eines Bindemittels ,

wobei sich die angegebenen prozentualen Mengen der gelösten Substanzen zu 100 Gew.-% addieren,

b) die erhaltene Lösung in Luftströmungen, welche

verschiedene Temperaturen zwischen Raumtemperatur bis 180 °C, bevorzugt 60 bis 140°C, aufweisen versprüht wird,

c) wasserdampfhaltiger Luftströmungen, abgezogen werden, und

d) die sich in einem Wirbelbett mit niedriger und zugleich variabler Höhe, bildenden homogenen Partikel als feste Form abführt und

e) bis zu 1 Gew.-% der gebildeten Partikel wieder in den Prozess zurückführt.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Int. Application No
PCT/EP 98/04556

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC 6 A61K9/20 A61K9/00 A61K31/375 A23G3/00				
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 6 A61K A23G				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)				
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT				
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
X	US 4 203 997 A (KÜPPERS ET AL.) 20 May 1980 see column 3, line 56 - line 66 see column 4, line 4 - line 8 see column 4, line 16 - line 26; examples	1-5,7-9, 11		
Y	EP 0 198 431 A (BASF CORPORATION) 22 October 1986 see page 4, line 3 - page 6, line 13; claims	12		
Y	EP 0 049 143 A (TAKEDA CHEMICAL INC.) 7 April 1982 see page 7, line 3 - line 7; claims	12		
A	US 3 293 132 A (L.E. STOYLE ET AL.) 20 December 1966 see claims; examples	1-11		
-/--				
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.				
* Special categories of cited documents :				
<table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 50%; vertical-align: top; border: none;"> "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed </td> <td style="width: 50%; vertical-align: top; border: none;"> "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family </td> </tr> </table>			"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family			
Date of the actual completion of the international search <div style="text-align: center; font-weight: bold;">9 December 1998</div>		Date of mailing of the international search report <div style="text-align: center; font-weight: bold;">15/12/1998</div>		
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer <div style="text-align: center; font-weight: bold;">Lepretre, F</div>		

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 98/04556

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	DE 26 16 078 A (TAKEDA CHEMICAL IND.) 10 February 1977 -----	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 98/04556

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4203997 A	20-05-1980	DE 2706660 A BE 864014 A CH 633711 A FR 2380777 A GB 1564687 A JP 53101518 A NL 7801780 A	24-08-1978 16-08-1978 31-12-1982 15-09-1978 10-04-1980 05-09-1978 21-08-1978
EP 198431 A	22-10-1986	CA 1279574 A DE 3687848 A DK 172286 A JP 2025428 C JP 7059509 B JP 61280428 A US 4830859 A	29-01-1991 08-04-1993 18-10-1986 26-02-1996 28-06-1995 11-12-1986 16-05-1989
EP 49143 A	07-04-1982	JP 1353917 C JP 57059803 A JP 61021526 B AR 229033 A AU 523837 B AU 6412380 A CA 1142432 A DK 430481 A,B, US 4372968 A ZA 8106504 A	24-12-1986 10-04-1982 27-05-1986 31-05-1983 19-08-1982 08-04-1982 08-03-1983 31-03-1982 08-02-1983 29-12-1982
US 3293132 A	20-12-1966	NONE	
DE 2616078 A	10-02-1977	JP 1168161 C JP 52015812 A JP 58000403 B BE 844452 A CA 1054520 A FR 2318621 A GB 1534066 A HK 2182 A MX 3239 E NL 7602657 A,B, US 4036948 A	30-09-1983 05-02-1977 06-01-1983 24-01-1977 15-05-1979 18-02-1977 29-11-1978 22-01-1982 06-08-1980 26-01-1977 19-07-1977

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. nationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/04556

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 6 A61K9/20 A61K9/00 A61K31/375 A23G3/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 A61K A23G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehorende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 203 997 A (KÜPPERS ET AL.) 20. Mai 1980 siehe Spalte 3, Zeile 56 - Zeile 66 siehe Spalte 4, Zeile 4 - Zeile 8	1-5, 7-9, 11
Y	siehe Spalte 4, Zeile 16 - Zeile 26; Beispiele	12
Y	--- EP 0 198 431 A (BASF CORPORATION) 22. Oktober 1986 siehe Seite 4, Zeile 3 - Seite 6, Zeile 13; Ansprüche	12
A	--- EP 0 049 143 A (TAKEDA CHEMICAL INC.) 7. April 1982 siehe Seite 7, Zeile 3 - Zeile 7; Ansprüche	12
	--- -/-	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

9. Dezember 1998

Absenddatum des internationalen Recherchenberichts

15/12/1998

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5816 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Lepretre, F

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/04556

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie ³	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	US 3 293 132 A (L.E. STOYLE ET AL.) 20. Dezember 1966 siehe Ansprüche; Beispiele -----	1-11
A	DE 26 16 078 A (TAKEDA CHEMICAL IND.) 10. Februar 1977 -----	

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 98/04556

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 4203997 A	20-05-1980	DE 2706660 A	24-08-1978
		BE 864014 A	16-08-1978
		CH 633711 A	31-12-1982
		FR 2380777 A	15-09-1978
		GB 1564687 A	10-04-1980
		JP 53101518 A	05-09-1978
		NL 7801780 A	21-08-1978
EP 198431 A	22-10-1986	CA 1279574 A	29-01-1991
		DE 3687848 A	08-04-1993
		DK 172286 A	18-10-1986
		JP 2025428 C	26-02-1996
		JP 7059509 B	28-06-1995
		JP 61280428 A	11-12-1986
		US 4830859 A	16-05-1989
EP 49143 A	07-04-1982	JP 1353917 C	24-12-1986
		JP 57059803 A	10-04-1982
		JP 61021526 B	27-05-1986
		AR 229033 A	31-05-1983
		AU 523837 B	19-08-1982
		AU 6412380 A	08-04-1982
		CA 1142432 A	08-03-1983
		DK 430481 A,B,	31-03-1982
		US 4372968 A	08-02-1983
		ZA 8106504 A	29-12-1982
US 3293132 A	20-12-1966	KEINE	
DE 2616078 A	10-02-1977	JP 1168161 C	30-09-1983
		JP 52015812 A	05-02-1977
		JP 58000403 B	06-01-1983
		BE 844452 A	24-01-1977
		CA 1054520 A	15-05-1979
		FR 2318621 A	18-02-1977
		GB 1534066 A	29-11-1978
		HK 2182 A	22-01-1982
		MX 3239 E	06-08-1980
		NL 7602657 A,B,	26-01-1977
		US 4036948 A	19-07-1977

